

# PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 10-032134

(43)Date of publication of application : 03.02.1998

(51)Int.CI. H01F 41/02  
B22F 1/00  
B22F 3/00  
C22C 38/00  
H01F 1/053  
H01F 1/08

(21)Application number : 08-358311

(71)Applicant : SUMITOMO SPECIAL METALS CO LTD

(22)Date of filing : 27.12.1996

(72)Inventor : TSUJIMOTO HIDEJI  
MINO NOBUTSUGU  
ISHIGAKI NAOYUKI

(30)Priority

Priority number : 08145179 Priority date : 14.05.1996 Priority country : JP

## (54) METHOD OF MANUFACTURING ANISOTROPIC BOND MAGNET

### (57)Abstract:

**PROBLEM TO BE SOLVED:** To manufacture the homogeneous anisotropic bond magnet having high magnetic characteristics and productivity by a method, wherein before or after or simultaneously, the blend mixing of magnetic powders with a resin as a binder, a specific amount of fine R-Fe-B base nano composite magnetic powders is blend mixed with the particles.

**SOLUTION:** After the blend-mixing of 0.9-49wt.% of R-Fe-B base nano composite magnet fine powders and 1-10wt.% of resin with total amount of anisotropic R-Fe-B base magnetic powders having assembled structure of recrystalline particles, made of R<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>B tetragonal system phase in the mean recrystalline particle diameter of 0.05μm-50μm, the primary molding step is performed to attain the density of the molded body of 3-5.7g/cm<sup>3</sup> at the temperature not exceeding the resin softening starting point. Next, after heating the primary molded body at the temperature exceeding the resin softening starting point but not exceeding the setting starting point, secondary molding step is performed in the magnetic field at the molding pressure of 2-10ton/cm<sup>2</sup> to be set. Accordingly, the anisotropic bond magnetic having high magnetic characteristics can be manufactured efficiently.

### LEGAL STATUS

[Date of request for examination] 06.03.2003

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

Copyright (C); 1998,2003 Japan Patent Office

(19)日本国特許庁 (JP)

(12) 公開特許公報 (A)

(11)特許出願公開番号

特開平10-32134

(43)公開日 平成10年(1998)2月3日

(51)Int.Cl. <sup>6</sup>	識別記号	序内整理番号	F I	技術表示箇所
H 01 F 41/02			H 01 F 41/02	G
B 22 F 1/00			B 22 F 1/00	Y
3/00			3/00	F
C 22 C 38/00	3 0 3		C 22 C 38/00	3 0 3 D
H 01 F 1/053			H 01 F 1/04	H

審査請求 未請求 請求項の数 2 FD (全 8 頁) 最終頁に続く

(21)出願番号 特願平8-358311

(22)出願日 平成8年(1996)12月27日

(31)優先権主張番号 特願平8-145179

(32)優先日 平8(1996)5月14日

(33)優先権主張国 日本 (JP)

(71)出願人 000183417

住友特殊金属株式会社

大阪府大阪市中央区北浜4丁目7番19号

(72)発明者 辻本 秀治

大阪府三島郡島本町江川2丁目15-17 住  
友特殊金属株式会社山崎製作所内

(72)発明者 三野 修嗣

大阪府三島郡島本町江川2丁目15-17 住  
友特殊金属株式会社山崎製作所内

(72)発明者 石垣 尚幸

大阪府三島郡島本町江川2丁目15-17 住  
友特殊金属株式会社山崎製作所内

(74)代理人 弁理士 押田 良久

(54)【発明の名称】 異方性ボンド磁石の製造方法

(57)【要約】

【課題】 成形時に均質な成形体を生産性よく得るとともに、磁石特性及び耐熱、耐候性の優れた異方性ボンド磁石が得られる製造方法の提供。

【解決手段】 異方性R-F e-B系磁石粉末に特定量の微細なR-F e-B系ナノコンポジット磁石粉末および熱硬化性樹脂を添加混合した後、樹脂軟化開始温度以下にて成形体の密度が特定密度になるとく1次成形した後、樹脂軟化開始温度以上、硬化開始温度以下に加熱し、磁場中にて特定の成形圧にて2次成形後硬化処理することにより、高い磁気特性及び耐熱、耐候性と共に均質な異方性ボンド磁石を生産性よく製造できる。

1

## 【特許請求の範囲】

【請求項1】 平均再結晶粒径が $0.05\text{ }\mu\text{m} \sim 50\text{ }\mu\text{m}$ の $\text{R}_1\text{Fe}_{14}\text{B}$ 正方晶相からなる再結晶粒の集合組織を有する異方性 $\text{R}-\text{Fe}-\text{B}$ 系磁石粉末に、前記磁石粉末との合計に対して、 $0.9 \sim 4.9\text{ wt\%}$ の $\text{R}-\text{Fe}-\text{B}$ 系ナノコンポジット磁石微粉末と $1 \sim 10\text{ wt\%}$ の熱硬化性樹脂を添加混合後、樹脂軟化開始温度以下にて成形体の密度が $3 \sim 5.7\text{ g/cm}^3$ になる如く1次成形した後、樹脂軟化開始温度以上、硬化開始温度以下に加熱後、磁場中にて成形圧 $2 \sim 10\text{ ton/cm}^2$ の2次成形し、その後、硬化処理することを特徴とする異方性ボンド磁石の製造方法。

【請求項2】 請求項1において、異方性 $\text{R}-\text{Fe}-\text{B}$ 系磁石粉末は、 $\text{R} 10 \sim 30\text{ at\%}$  ( $\text{R}$ は $\text{Y}$ を含む希土類元素の1種又は2種以上)、 $\text{B} 2 \sim 28\text{ at\%}$ 、 $\text{Fe} 6.5 \sim 8.0\text{ at\%}$ を主成分とする鉄塊、あるいは溶体化処理した鉄塊を $750^\circ\text{C} \sim 950^\circ\text{C}$ に30分～8時間、 $\text{H}_2$ ガス雰囲気中に保持した後、引き続いて温度 $750^\circ\text{C} \sim 950^\circ\text{C}$ に15分～4時間、真空雰囲気中に保持した水素化処理にて得られた磁石粉末である異方性ボンド磁石の製造方法。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

【発明の属する技術分野】この発明は、耐熱性、耐候性と共に磁気特性、特に残留磁束密度（以下 $\text{Br}$ といふ）、最大磁気エネルギー積（以下 $(\text{BH})_{\text{max}}$ といふ）および角型性のすぐれた異方性ボンド磁石の製造方法に係り、 $\text{R}-\text{Fe}-\text{B}$ 系合金鉄塊あるいは前記鉄塊を粉碎して得られた粗粉碎粉を特定の熱処理条件の $\text{H}_2$ 処理法により、特定の平均再結晶粒径を有する正方晶の $\text{R}_1\text{Fe}_{14}\text{B}$ 相の再結晶粒集合組織を有する異方性磁石粉末となし、これに特定量の微細な $\text{R}-\text{Fe}-\text{B}$ 系ナノコンポジット磁石粉末およびバインダーの樹脂を配合混合後、2段階の成形を行い、さらに硬化処理することにより、成形時の単位重量のばらつきが少なく製品寸法、精度が高く、さらに耐熱性、耐候性並びに $\text{Br}$ 、 $(\text{BH})_{\text{max}}$ 、角型性のすぐれた異方性ボンド磁石を生産性よく製造する方法に関する。

## 【0002】

【従来の技術】一般にボンド磁石は焼結磁石に比して、磁気特性では劣るにもかかわらず、機械的強度にすぐれ、且つ形状の自由度が高いこと等より、近年、その利用範囲が急速に拡大している。かかるボンド磁石は、磁石粉末と有機バインダー、金属バインダー等により結合して成形されるが、ボンド磁石の磁気特性は使用する磁石粉末の磁気特性に左右される。

【0003】ボンド磁石用磁石粉末としては、（1） $\text{R}-\text{Fe}-\text{B}$ 系鉄塊を機械的粉碎法、あるいは $\text{H}_2$ 吸蔵崩壊法により得られた磁石粉末や、あるいは、（2）液体急冷法やアトマイズ法によって、溶融合金から超急冷し

て得られた磁石粉末が利用されている。

【0004】前者の（1）磁石粉末では、 $\text{R}_1\text{Fe}_{14}\text{B}$ 相が粒内破壊して粉碎されるので、 $\text{R}_1\text{Fe}_{14}\text{B}$ 相がRリッチ相で囲まれた組織にならず、 $\text{R}_1\text{Fe}_{14}\text{B}$ 相の一部にRリッチ相が一部付着した組織となり、また、粉碎時に磁石粉末に歪が残留するため、粉碎のままでは保磁力 $\text{iHc}$ は $3\text{ kOe}$ 以下に低下し、歪取り熱処理した磁石粉末や $\text{R}_1\text{Fe}_{14}\text{B}$ 相粒界部にRリッチ相を形成させる集合粉末とした磁石粉末でも、ボンド磁石用粉末として使用した場合、成形圧力の増加に伴って、ボンド磁石の*iHc*は大幅に低下し、また、バインダーの硬化時に磁気特性が低下する欠点がある。

【0005】一方、後者の（2）磁石粉末の場合は、個々の $\text{R}_1\text{Fe}_{14}\text{B}$ 相の結晶粒の結晶方向が任意で粉末の磁気特性が等方性であるため、ボンド磁石自体も等方性であるため、高磁気特性が望めず、実用的には用途が制限される問題がある。

【0006】最近、ボンド磁石の磁気特性の改善向上のため、 $\text{R}-\text{Fe}-\text{B}$ 系磁石粉末を2段成形することが提案（特開平2-250303号公報）されているが、前記公報の磁石粉末は $\text{R}-\text{Fe}-\text{B}$ 系磁石粉は液体急冷法にて得られた等方性磁石粉末であり、また得られたボンド磁石も等方性磁石のため、磁気特性の改善向上は期待できなかった。

## 【0007】

【発明が解決しようとする課題】そこで、最近、異方性ボンド用磁石粉末として、 $\text{R}-\text{Fe}-\text{B}$ 系合金鉄塊あるいは粉碎後の粗粉碎粉を特定の熱処理条件の $\text{H}_2$ 処理法により、 $\text{R}_1\text{Fe}_{14}\text{B}$ 正方晶相からなる再結晶集合組織となした異方性 $\text{R}-\text{Fe}-\text{B}$ 系磁石粉末が提案されている（特開平1-132106号）。

【0008】前記異方性磁石粉末を用いて異方性ボンド磁石を製造する方法としては、前記磁石粉末にバインダーとして溶剤にて液状化した樹脂を添加配合後、溶剤を蒸発させて前記粉末を乾燥後、圧縮成形し、さらにバインダー硬化のためのキュア熱処理する工程などが一般に知られている。

【0009】しかし、原料粉末の異方性磁石粉末は非常に酸化され易いえ、予め磁石粉末をカッピング処理等で粉末表面を被覆しても、成形時の応力によって磁石粉末には割れが発生し、活性な金属面が露出してより酸化され易くなり、また、成形したボンド磁石は密度が低くて空孔部が多く、前記空孔部に $\text{O}_2$ 、 $\text{H}_2\text{O}$ が容易に侵入してボンド磁石が酸化し、磁気特性が時間とともに劣化する問題があった。さらに成形時に磁石粉末が割れることは、磁石粉末へ多量の歪を導入することを意味し、保磁力および角型性の劣化を生じる観点からも好ましくなかった。

【0010】また、発明者はボンド磁石の磁気特性の著しい改善向上のため、 $\text{R}-\text{Fe}-\text{B}$ 系鉄塊あるいは粉碎

40 等で粉末表面を被覆しても、成形時の応力によって磁石粉末には割れが発生し、活性な金属面が露出してより酸化され易くなり、また、成形したボンド磁石は密度が低くて空孔部が多く、前記空孔部に $\text{O}_2$ 、 $\text{H}_2\text{O}$ が容易に侵入してボンド磁石が酸化し、磁気特性が時間とともに劣化する問題があった。さらに成形時に磁石粉末が割れることは、磁石粉末へ多量の歪を導入することを意味し、保磁力および角型性の劣化を生じる観点からも好ましくなかった。

50 【0010】また、発明者はボンド磁石の磁気特性の著しい改善向上のため、 $\text{R}-\text{Fe}-\text{B}$ 系鉄塊あるいは粉碎

後の粗粉碎粉を特定の熱処理条件にて水素化処理して得られた特定の平均再結晶粒径を有する正方晶  $R_2Fe_1$ 、B相の再結晶粒集合組織を有する異方性磁石粉末に熱硬化樹脂を添加混合後、温間中にて磁場中成形した異方性ボンド磁石を提案（特願平6-311874号）したが、前記方法では加熱された金型中に原料粉末を供給中に、原料粉末は金型上表面及び内壁面に溶着して、金型中に均一に原料粉末を装入することが困難、且つ均質な成形体が得られず、また生産性の点でも問題があった。

【0011】また、ボンド磁石の密度および磁石特性のさらなる改善向上のため、水素化処理した磁気異方性を有する原料粉末を室温にして低圧力により仮成形し、原料粉末の脱気を行った後、原料粉末を加熱して温間中にて磁場中成形する方法が提案（特開平8-31677号）されているが、前記方法を用いても、ボンド磁石の密度の向上が充分でなく、このため磁気特性の向上も最大エネルギー積  $(BH)_{max}$  で0.2~0.5 MG Oe に止まり、さらにボンド磁石内部の空孔部は依然として多く存在するため、ボンド磁石の酸化による磁石特性の経時的劣化により改善向上は期待できなかった。

【0012】この発明は、上述の異方性ボンド磁石の問題を解消し、耐熱性、耐候性と共に磁気特性、特に  $B_r$ 、 $(BH)_{max}$  および角型性のすぐれた異方性ボンド磁石を成形時の単位重量のばらつきが少なく、製品寸法を精度よく製造できる方法の提供を目的としている。

【0013】

【課題を解決するための手段】従来の異方性ボンド磁石の問題点を解決すべく、発明者らは、成形したボンド磁石中の空孔部を減少させる方法について、種々検討を加えた結果、前記磁石粉末にバインダーとして樹脂を配合混合する前、もしくは配合混合と同時に、あるいは配合混合した後に、特定量の微細な  $R_2Fe_1$ -B系ナノコンポジット磁石粉末を配合混合することにより、 $R_2Fe_1$ -B系ナノコンポジット磁石粉末は2段成形時に磁石粉末間隙、あるいは薄く樹脂にて被覆された磁石粉末間隙に優先的に充填され、かかる現象により、ボンド磁石中の空孔率が減少すること、さらに、前記のごとく、ボンド磁石の成形を温間中で行うことにより、樹脂は軟化して、流動性が増加するため、密度が向上し、その結果、磁気特性の向上と空孔率の低減が図れること、また、磁石粉末間隙を占める  $R_2Fe_1$ -B系ナノコンポジット磁石粉末は2段成形時に生じる異方性磁石粉末局部への応力集中を緩和し、磁石粉末の割れを抑制することを知見した。

【0014】また、発明者らは、1) 空孔部の減少によって、磁石内部への  $O_2$ 、 $H_2O$  の侵入が防止され、耐熱性、耐候性が顕著に向上すること、2) 従来空孔部であった部分が液体急冷  $R_2Fe_1$ -B系永久磁石粉末によって、置換されるため、磁気特性、特に  $B_r$ 、 $(BH)_{max}$  が向上すること、3) さらに磁石粉末の割れ抑制に

よって、ボンド磁石中の非常に活性な金属表面が減少するので、耐熱性、耐候性は一段と向上し、4) また、歪の導入も抑制されるので、磁気特性、特に角型性が向上すること、5) かかる作用効果が相乗され、ボンド磁石の耐熱性、耐候性の向上、および磁気特性の改善向上に有効なることを知見した。

【0015】さらに、発明者らは、温間成形時の製造時の問題点を解決すべく、種々検討した結果、前記異方性  $R_2Fe_1$ -B系磁石粉末と  $R_2Fe_1$ -B系ナノコンポジット磁石微粉末および熱硬化性樹脂の混合物を樹脂軟化開始温度以下にて成形体の密度が特定密度になるとく1次成形した後、樹脂軟化開始温度以上、硬化開始温度以下に加熱し、磁場中にて特定の成形圧力にて2次成形後、硬化処理することにより、高い磁気特性と共に均質な異方性ボンド磁石を生産性よく、製造できることを知見し、この発明を完成した。

【0016】すなわち、この発明は、平均再結晶粒径が0.05  $\mu m$ ~50  $\mu m$  の  $R_2Fe_1$ -B正方晶相からなる再結晶粒の集合組織を有する異方性  $R_2Fe_1$ -B系磁石粉末と、前記磁石粉末との合計に対して0.9~4.9 wt%の  $R_2Fe_1$ -B系ナノコンポジット磁石微粉末と1~10 wt%の樹脂を添加混合後、樹脂軟化開始温度以下にて、成形体の密度が3~5.7 g/cm<sup>3</sup>になることく、1次成形した後、樹脂軟化開始温度以上、硬化開始温度以下に加熱後、磁場中にて成形圧2~10 t<sub>0</sub>n/cm<sup>2</sup>の2次成形し、その後、硬化処理することを特徴とする異方性ボンド磁石の製造方法である。

【0017】また、この発明は、上記の製造方法において、異方性  $R_2Fe_1$ -B系磁石粉末が、R 10~30 at% (RはYを含む希土類元素の1種又は2種以上)、B 2~28 at%、Fe 65~80 at%を主成分とする鉄塊あるいは溶体化処理した鉄塊を750°C~950°Cに30分~8時間、H<sub>2</sub>ガス雰囲気中に保持した後、引き続いて温度750°C~950°Cに15分~4時間、真空雰囲気中に保持した水素化処理して得られた磁石粉末である異方性ボンド磁石の製造方法を併せて提案する。

【0018】

【発明の実施の形態】この発明において、 $R_2Fe_1$ -B正方晶相からなる再結晶集合組織の磁石粉末は、 $R_2Fe_1$ -B系合金鉄塊あるいは前記鉄塊を粗粉碎して得られた粗粒を均質化処理するか、または、均質化処理せずにH<sub>2</sub>ガス雰囲気中で昇温し、温度750°C~950°Cに30分~8時間のH<sub>2</sub>ガス雰囲気中に保持した後、引き続いて温度750°C~950°Cに5分~4時間の真空雰囲気中に保持した後、冷却し、粉碎して得られるものである。

【0019】かかる異方性  $R_2Fe_1$ -B系磁石粉末の平均粒度を5  $\mu m$ ~500  $\mu m$ に限定した理由は、5  $\mu m$ 未満では酸化し易く作業中に燃える恐れがあり、また、

50

500  $\mu\text{m}$ を超えると磁石粉末として実用的ではないので好ましくないことにあり、好ましい平均粒度は10  $\mu\text{m}$ ～300  $\mu\text{m}$ である。

【0020】また、異方性R-F e-B系磁石粉末の平均再結晶粒径は、0.05  $\mu\text{m}$ 未満では着磁が困難となり、50  $\mu\text{m}$ を超えるとi Hc(保磁力)が5 kOe以下となり、磁気特性が低下するため、0.05  $\mu\text{m}$ ～50  $\mu\text{m}$ の範囲とし、好ましい平均再結晶粒径は0.1  $\mu\text{m}$ ～10  $\mu\text{m}$ である。

【0021】この発明において、異方性磁石粉末に配合混合する等方性ナノコンポジット磁石粉末の組織は、平均結晶粒径50 nm以下の体心立方鉄および鉄ホウ化物を含む軟質磁性相とNd, Fe, B型結晶を有する硬質磁性相からなり、軟質磁性相の磁化が硬質磁性相の磁化と交換相互作用により結合して、コンポジット全体としてあたかも単一の磁性相で構成されて、従来の永久磁石のように振る舞うというものであり、一般に「交換スプリング磁石」とも呼ばれる。ナノコンポジット磁性体は溶融状態から超急冷凝固法によりいったん非晶質金属を得た後、熱処理により結晶化し、更にこれを粉碎して粉末化して得る。

【0022】この発明において、特定の異方性R-F e-B系磁石粉末に配合混合するR-F e-B系ナノコンポジット磁石粉末の平均粒度は、1.0  $\mu\text{m}$ 未満では実際の製造上困難かつ粉末の極度の酸化と磁気特性の低下を生じ、また、50  $\mu\text{m}$ を超えると成形時の空孔率低減効果や、応力緩和効果、すなわち磁石粉末の割れ抑制効果が少なく、耐熱性、耐候性並びに磁気特性向上の効果が少ないので好ましくなく、R-F e-B系ナノコンポジット磁石粉末の粒度は1.0  $\mu\text{m}$ ～50  $\mu\text{m}$ とする。好ましいR-F e-B系ナノコンポジット磁石粉末の粒度は1.0  $\mu\text{m}$ ～10  $\mu\text{m}$ である。

【0023】また、R-F e-B系ナノコンポジット磁石粉末の配合量は、磁石粉末との合計に対して、0.9 wt%未満では空孔率低減効果、すなわち耐熱性、耐候性ならびに磁気特性の改善効果が得られず、また4.9 wt%を超えるとボンド磁石の磁気特性を劣化するので、0.9 wt%～4.9 wt%とする。好ましいR-F e-B系ナノコンポジット磁石粉末の配合量は1 wt%～30 wt%である。

【0024】この発明の異方性R-F e-B系磁石粉末に用いる希土類元素Rは、組成の10原子%～30原子%を占めるが、Nd, Pr, Dy, Ho, Tbのうち少なくとも1種、あるいはさらに、La, Ce, Sm, Gd, Er, Eu, Tm, Yb, Lu; Yのうち少なくとも1種を含むものが好ましい。また、通常Rのうち1種をもって足りるが、実用上は2種以上の混合物(ミックサメタル、シジム等)を入手上の便宜等の理由により用いることができる。なお、このRは純希土類元素でなくともよく、工業上入手可能な範囲で製造上不可避な不純

物を含有するものでも差し支えない。

【0025】Rは、上記系磁石粉末における必須元素であって、10原子%未満では結晶構造が $\alpha$ -鉄と同一構造の立方晶組織となるため、高磁気特性、特に高保磁力が得られず、30原子%を超えるとRリッチな非磁性相が多くなり、残留磁束密度(B<sub>r</sub>)が低下してすぐれた特性の永久磁石が得られない。よって、Rは、10原子%～30原子%の範囲が望ましい。

【0026】Bは、上記系磁石粉末における必須元素であって、2原子%未満では菱面体構造が主相となり、高い保磁力(i Hc)は得られず、28原子%を超えるとBリッチな非磁性相が多くなり、残留磁束密度(B<sub>r</sub>)が低下するため、すぐれた永久磁石が得られない。よって、Bは2原子%～28原子%の範囲が望ましい。

【0027】Feは、上記系磁石粉末において必須元素であり、65原子%未満では残留磁束密度(B<sub>r</sub>)が低下し、80原子%を超えると高い保磁力が得られない。また、Feの一部をCoで置換することは、得られる磁石の磁気特性を損なうことなく、温度特性を改善することができるが、Co置換量がFeの20%を超えると、逆に磁気特性が劣化するため、好ましくない。

Coの置換量がFeとCoの合計量で5原子%～15原子%の場合は、(B<sub>r</sub>)は置換しない場合に比較して増加するため、高磁束密度を得るために好ましい。

【0028】また、R, B, Feのほか、工業的生産上不可避的不純物の存在を許容でき、例えば、Bの一部を4.0 wt%以下のC、2.0 wt%以下のP、2.0 wt%以下のS、2.0 wt%以下のCuのうち少なくとも1種、合計量で2.0 wt%以下で置換することにより、永久磁石の製造性改善、低価格化が可能である。

【0029】さらに、Al, Ti, V, Cr, Mn, Bi, Nb, Ta, Mo, W, Sb, Ge, Ga, Sn, Zr, Ni, Si, Zn, Hfのうち少なくとも1種は、磁石粉末に対してその保磁力、減磁曲線の角型性を改善あるいは製造性の改善、低価格化に効果があるため添加することができる。なお、添加量の上限は、ボンド磁石の(BH)<sub>max</sub>を14MGOe以上とするには、(B<sub>r</sub>)が少なくとも8 kG以上必要となるため、該条件を満たす範囲が望ましい。

【0030】この発明において、配合混合する等方性ナノコンポジット磁石粉末の組成のRは、Pr, Nd, Dyの1種または2種以上を特定量含有のときのみ、高い磁気特性が得られ、他の希土類元素例えば、Ce, Laではi Hcが2 kOe以上の特性は得られず、重希土類元素では磁気モーメントがNdと逆方向に向く性質を有するため、磁化を著しく減少させる傾向があるので好ましくない。Rは、3 at%未満では4.0 kOe以上のi Hcが得られず、6 at%を超えると5 kG以上のB<sub>r</sub>が得られないでの、3～6 at%とする。好ましいR

量は3.5～5.5at%である。

【0031】Bは、10at%未満では超急速法を用いても非晶質組織が得られず、熱処理しても3kOe未満のiHcしか得られず、また、30at%を越えると5kOe以上のiHcが得られないため、10at%～30at%の範囲とする。好ましい範囲は15～20at%である。

【0032】Coは、Br、減磁曲線の角型性および温度特性の向上に有効であるが、Feに対する置換量が50%を越えると6kG以上のBrが得られないので、Co量は0～50%とする。好ましい範囲は0.01～0.1%である。

【0033】Mは、Cr、V、Mo、Al、Si、Cu、Ga、Pb、Au、Pt、Agの1種または2種以上を添加することにより、iHcの向上、Brの減磁曲線の角型性の改善向上に有効であるが、0.01at%未満では前記効果が得られず、10at%を越えると逆に角型性が低下するので、0.01at%～10at%の添加量とする。好ましい範囲は0.05at%～6at%である。

【0034】なお、この発明においては、前記R-Fe-B系ナノコンポジット磁石微粉末の他に、フェライト磁石粉末、液体急速R-Fe-B系磁石微粉末、R-Co系磁石微粉末、R-Fe-N系磁石微粉末を複合混合してもよい。

【0035】また、この発明において、熱硬化性樹脂の種類は特に制限されないが、従来よりボンド磁石に使用されるエポキシ樹脂、フェノール樹脂、ポリエチル樹脂などを用いることができ、特に熱硬化性樹脂としてはエポキシ樹脂が好ましい。熱硬化性樹脂は必要に応じて、硬化剤、硬化促進剤と一緒に使用する。

【0036】熱硬化性樹脂は、軟化温度が40°C～100°Cのものが使用でき、樹脂の軟化温度が40°C未満では常温でも原料粉末の流動性が悪くなり、均質な1次成形体は得難く、また100°Cを超えると、金型に投入した1次成形体を樹脂の軟化温度以上に加熱するのに長時間を要し、また加熱時の温度調整や磁場印加のための磁気回路の設計も難しくなるため、軟化温度が40°C～100°Cの樹脂を使用することが望ましく、さらに好ましい軟化温度は50°C～90°Cである。

【0037】また、バインダーとしての樹脂の配合量は、1wt%未満ではボンド磁石の強度が十分に得られず、また10wt%を超えると磁気特性の劣化を招来し好ましくないため、樹脂の配合量は1～10wt%とする。

【0038】この発明の製造条件について限定した理由を説明する。1次成形において、温度が樹脂の軟化開始温度を超えると、原料粉末の流動性が失われて、金型内への充填が困難になるため、温度は樹脂の軟化開始温度以下にする。1次成形においては、磁場の付与は任意で

あるが、磁場を付与しない方が金型残磁の影響がなく、より均一な原料粉末の充填が可能となり、また生産性が大で成形体の残磁もないため、1次成形体への粉付きも少なくかつ作業もし易いため好ましい。

【0039】成形体の密度は、磁石粉末と樹脂との混合粉末の粒度分布及び成形圧により決まるが、成形体の密度が3g/cm<sup>3</sup>未満では1次成形体の強度が低くハンドリングに支障を及ぼすため、2次成形時に1次成形体を金型内に装入することが困難となり、また、5.7g/cm<sup>3</sup>を超えると磁石粉末の機械的な拘束力が強く、2次成形時の磁場配向が困難となるので好ましくない。なお、1次成形体の形状、寸法は2次成形用金型内に装入することより、2次成形体の形状、寸法より小でなければならない。

【0040】また、2次成形において、温度を樹脂軟化開始温度以上、硬化開始温度以下に限定した理由は、樹脂軟化開始温度未満ではボンド磁石の密度が低く十分な磁石特性及び強度が得られないためであり、また、硬化開始温度を超えると成形体を得る以前に硬化が開始し、磁場配向並びに高密度化が困難となり、また磁石粉末が酸化し、得られたボンド磁石の磁気特性、耐食性が低下するためである。

【0041】また、2次成形圧は、2Ton/cm<sup>2</sup>未満ではボンド磁石の密度が低く、優れた磁気特性が得られず、また、10Ton/cm<sup>2</sup>を超えると金型の損傷、破損を惹起するので好ましくない。さらに好ましい成形圧は4Ton/cm<sup>2</sup>～10Ton/cm<sup>2</sup>である。また、2次成形時の磁場の強さは2kOe以上、好ましくは5kOe以上で、上限値は規定はないが、直流電流コイルによる静磁場の上限は実用上、30kOe程度である。また、パルス強磁場を単独または静磁場との併用で用いてもよく、パルス磁場では50kOe以上の磁場を得ることも可能であり、より好ましい。

【0042】

【実施例】

実施例1

原料として真空溶解炉にて溶解铸造し、組成がNd1.6at%～B6at%～Co12at%～Ga1at%～残部Feからなる、R-Fe-B系磁石用合金鉄塊を得た。これらの合金鉄塊を温度1140°C、時間1.5時間でAr雰囲気中にて均質化処理を行った。前記鉄塊を加熱炉に挿入し、760Ton/m<sup>2</sup>のH<sub>2</sub>ガスとして、加熱炉内の温度を室温から温度850°Cに上昇し、引き続いて温度850°Cに3時間保持した後、850°Cに1時間保持して脱H<sub>2</sub>を行って、真空度1×10<sup>-3</sup>Torrになるまで排気冷却した。その後、鉄塊をAr雰囲気中で300μm以下になるまで粉碎して、R-Fe-B系磁石粉末を得た。得られた磁石粉末は平均結晶粒径0.5μmのR<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>B正方晶相からなる再結晶粒の集合組織を有する異方性磁石粉末であった。

【0043】また、添加配合するR-F e-B系ナノコンポジット磁石粉末は組成がNd 4.5 at% - B 17 at% - Co 4.0 at% - Cr 0.5 at% - 残部Feからなる合金を溶製後、メルトスピニング装置を用いて、周速度20m/sで回転する銅製ロール上に径0.8mmの石英ノズルより噴射して、幅3mmの非晶質薄帯を得た。前記薄帯を15°C/分の昇温速度でArガス雰囲気中で加熱し、650°Cに約5分間保持して冷却後、粉碎し、平均結晶粒径50nm以下の体心立方鉄および鉄ホウ化物を含む軟質磁性相とNd<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>B型結晶を有する硬質磁性相からなる平均粒径3.5μmの等方性ナノコンポジット磁石粉末を得た。

【0044】上記Nd-F e-B系ナノコンポジット磁石微粉末を、前述の工程で得られた平均粒径150μmの前記異方性磁石粉末との合計に対して15wt%配合後、V型混合器にて30分間混合し、さらに、バインダーとして3wt%のエポキシ樹脂（軟化開始温度（74°C）、硬化開始温度（123°C））を配合混合後、真空乾燥し、温度25°Cのプレス金型に自動給粉装置を用いて充填後に、成形圧力を変えて、表1に記載の密度になるごとく各条件にて50個を1次成形した。その後、それらを温度80°Cならびに100°Cのプレス金型に挿入して磁場の強さ12kOeの静磁場にて成形圧8ton/cm<sup>2</sup>の2次成形を行い、得られた2次成形体を180°Cで1時間の硬化処理を行って、各条件ごと50個の異方性ボンド磁石を得た。

【0045】得られた異方性ボンド磁石の磁気特性、角型性および空孔率と耐候性試験結果を表2に表す。ここで、空孔率は、異方性磁石粉末、R-F e-B系ナノコンポジット磁石粉末ならびに樹脂の密度と配合比、および成形したボンド磁石の実測密度から計算によって求めた。

【0046】また、耐熱性、耐候性試験の試験条件は大気中で100°C×1000時間の条件で、試験中の磁束の経時変化を測定した。なお、磁束の経時変化試験方法は試験片を着磁した後、磁束を測定し、ついで大気中にて100°Cに1000時間放置後、再び試験片を着磁し磁束を測定し、再着磁によっても復元しない減磁率、すなわち永久的な減磁率を算出した。この永久的な減磁は磁石の腐食等による変質に起因するものであり、耐熱性、耐候性向上の判定指標となり得る。また、ボンド磁石の成形の安定性を評価するために、作製した50個のボンド磁石の重量を測定し、そのばらつきについて調査した結果を、表3に表す。

【0047】比較例1

実施例1にて得られた磁石粉末に、液体急冷R-F e-B系永久磁石粉末を配合混合しない以外は実施例1と同一の製造条件（ただし、2次成形温度は100°Cに限定）にて異方性ボンド磁石を作成し、得られた異方性ボンド磁石の磁気特性、角型性および空孔率と耐候性試験結果を表2に、重量測定結果を表3に表す。なお、この比較例1の製造方法は、前述した特開平8-31677号に記載の製造方法に相当する。

【0048】比較例2

実施例1と同一の異方性ボンド磁石用コンパウンドを金型温度100°Cのプレス金型に自動給粉装置を用いて充填後、12kOeの静磁場中、8ton/cm<sup>2</sup>の成形圧力で50個の成形体を作成し、得られた成形体を180°Cで1時間硬化処理して異方性ボンド磁石を得た。得られた異方性ボンド磁石の磁気特性、角型性および空孔率と耐候性試験結果を表2に、重量測定結果を表3に表す。

【0049】

【表1】

11

12

	No.	Nd-Fe-B系 ナノコンポジット 磁石微粉末量(wt%)	1次成形体の密度 (g/cm <sup>3</sup> )	2次成形温度 (℃)
実 施 例 1	1	15	3.3	80
	2	15	3.8	80
	3	15	4.5	80
	4	15	5.0	80
	5	15	5.6	80
	6	15	3.3	100
	7	15	3.8	100
	8	15	4.5	100
	9	15	5.0	100
	10	15	5.6	100
比較 例 1	1	0	3.3	100
	2	0	3.8	100
	3	0	4.5	100
	4	0	5.0	100
	5	0	5.6	100
比較 例 2	1	15	-	100

【0050】

\* \* 【表2】

No.	ボンド磁石特性			角型性 (kOe)	空孔率 (%)	耐候性試験後の 永久的な減磁 (%)
	Br(kG)	(BH) <sub>max</sub> (MG Oe)	iHc(kOe)			
実 施 例 1	1	9.31	19.1	5.05	3.7	-4.5
	2	9.34	19.3	5.03	3.6	-4.4
	3	9.29	19.0	5.03	3.6	-4.5
	4	9.32	19.2	5.06	3.9	-4.7
	5	9.33	19.2	5.04	3.8	-4.6
	6	9.48	19.7	5.10	3.4	-4.3
	7	9.45	19.6	5.06	3.2	-4.2
	8	9.47	19.6	5.08	3.3	-4.5
	9	9.49	19.7	5.07	3.2	-4.1
	10	9.50	19.7	5.07	3.2	-4.3
比較 例 1	1	9.23	18.6	4.98	8.2	-11.6
	2	9.27	18.6	4.94	8.5	-11.8
	3	9.28	18.6	4.97	8.2	-11.7
	4	9.21	18.5	4.95	8.5	-12.0
	5	9.25	18.6	4.91	8.2	-11.8
比較 例 2	1	9.47	19.7	6.07	3.3	-4.2

【0051】

\* \* [表3]

No.	ボンド磁石重量(g) (n=50)			
	平均	最小	最大	標準偏差
実施例1	1 6.9369	6.8741	6.9935	0.0388
	2 6.9632	6.9033	7.0191	0.0347
	3 6.9654	6.9062	7.0218	0.0341
	4 6.9638	6.9046	7.0199	0.0353
	5 6.9646	6.9058	7.0187	0.0332
	6 6.9415	6.9038	6.9985	0.0384
	7 6.9657	6.9051	7.0169	0.0365
	8 6.9671	6.9043	7.0184	0.0347
	9 6.9663	6.9052	7.0176	0.0335
	10 6.9674	6.9060	7.0188	0.0398
比較例1	1 6.8901	6.8268	6.9472	0.0394
	2 6.8912	6.8276	6.9501	0.0389
	3 6.8923	6.8265	6.9498	0.0366
	4 6.8909	6.8270	6.9485	0.0372
	5 6.8918	6.8283	6.9504	0.03781
比較例2	1 6.3261	6.0628	6.5846	0.1783

【0052】

【発明の効果】この発明による異方性ボンド磁石は、R-F<sub>2</sub>e-B系鉄塊あるいは前記鉄塊を粉碎して得られた粗粉碎粉を、特定の熱処理条件のH<sub>2</sub>処理法により、特定の平均再結晶粒径を有する正方晶のR<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>B相の再結晶粒集合組織を有する異方性磁石粉末となし、これに所定量の微細なR-F<sub>2</sub>e-B系ナノコンポジット磁石※

※粉末とバインダー樹脂を配合混合後、特定の温度範囲で特定密度範囲に1次成形した成形体を次いで所定の温度範囲、磁場強度範囲、成形圧力範囲で2次成形して得られたもので、この方法によれば、実施例に明らかなように磁気特性及び耐熱、耐候性に優れかつ単重ばらつきの少ない、すなわち寸法精度の高い、異方性ボンド磁石を安定して製造することができる。

フロントページの続き

(51)Int.Cl. \*

H 01 F 1/08

識別記号 庁内整理番号

F I

H 01 F 1/08

技術表示箇所

A